

Zircaloy-4의 요드 응력부식균열의 K_{ISCC} 와 전파속도 측정
Determination of K_{ISCC} and Propagation Rate of I-SCC in Zircaloy-4

류우석, 김성호, 주기남, 국일현
한국원자력연구소

요 약

재결정 및 응력이완 Zircaloy-4의 요드에 의한 응력부식균열의 전파속도를 직류전압강하측정법(DCPD, Direct Current Potential Drop)을 이용하여 측정하고 임계응력집중계수(K_{ISCC})를 구하였다. 요드농도는 1000 Pa의 일정한 분압을 유지하도록 Ar gas를 65°C의 수조 속에 들어있는 요드 chamber를 통과시켜 시편에 공급하였다. 재결정 Zircaloy-4의 SCC 임계응력계수(K_{ISCC})는 350°C에서 약 9.5 MPa√m 이고, 약 19 MPa√m 이상에서 SCC 2단계 양상을 보이며 $4 \sim 7 \times 10^{-4}$ mm/sec 의 일정한 속도에 이르렀다. 응력이완 Zircaloy-4의 SCC 임계응력계수(K_{ISCC})는 350°C에서 약 8 MPa√m이며, SCC 2단계의 평행전파속도는 17 MPa√m 이상에서 $5 \sim 7 \times 10^{-4}$ mm/sec 정도였다.

Abstract

K_{ISCC} and Propagation Rate of I-SCC in recrystallized and stress-relieved Zircaloy-4 were determined using a DCPD method. Dynamic system with Ar gas flowing through iodine chamber in 65°C water bath provided a constant iodine pressure of 1000 Pa during test. K_{ISCC} of recrystallized Zircaloy-4 at 350 °C was about 9.5 MPa√m, and plateau crack propagation rate at second SCC stage was $4 \sim 7 \times 10^{-4}$ mm/sec above 19 MPa√m. For stress-relieved Zircaloy-4, K_{ISCC} at 350 °C was about 8 MPa√m, and plateau velocity at second SCC stage was $5 \sim 7 \times 10^{-4}$ mm/sec above 17 MPa√m.

1. 서 론

핵연료-피복재 상호작용(PCI, Pellet-clad interaction)은 20여년 전부터 핵연료의 파손원인 중의 하나로 판명되어져 왔다. 핵연료의 출력을 일정 속도 이상으로 상승시키면 모든 발전소에서 핵연료 손상을 경험하게 되며, 그 파손 기구는 핵분열 생성물질인 요드에 의한 응력부식균열이라고 지금까지 믿고 있다¹.

PCI 파손을 방지하기 위하여 여러 가지 방법을 강구하여 왔다. 예로써, BWR의 경우는 피복관의 국부적 응력집중을 막기 위하여 Zircaloy-2 피복관 내면에 상대적으로 큰 연성을 갖는 Zr을 크래딩한 zirconium liner Zircaloy-2를 개발하였다. CANDU의 경우, 피복관과 핵연료 소자 사이의 윤활성을 증대시키기 위하여 피복관 내면에 흑연층을 도포하여 사용하고 있다. 그러나 PCI 파손을 방지하기 위하여 운전조건으로 결정되어 있는 startup 혹은 load following operation의 승온 기준은, 정상 운전이나 가동중 정지시에 핵연료의 파손이 발생하지 않음을 증명하고 또한 어떤 비정상적 환경에서도 파손 확율을 예측할 수 있어야 한다. PCI 기준이 프랑스나 영국은 인허가의 요구조건에 포함되어 있으며, 인도는 흑연층 도포 품질기준의 한 방법으로 이용되고 있다. 그러나 PCI 기준은 일반적으로 실험로나 상용로에서 구한 실험적 자료를 기준으로 만들어진 것으로, PCI 기준을 더욱 정량적으로 설정할 수 있는 균열전파 기구를 이용한 파괴 역학적 모델 정립은 아직

부족한 상태이다.

파괴역학적 모델은 PCI 저항성이 높은 새로운 핵연료의 개발을 위해서 그리고 핵연료 설계 인자의 해석을 위하여 매우 유용하게 사용될 수 있다. 현재 이 모델을 개발하는데 있어 가장 큰 장애 요인은 요드에 의한 응력부식균열의 균열전파 속도에 대한 자료 부족이다². 내부가압법이나 맨드렐법에 의한 응력부식균열 실험에서 임계요드농도, 문지방 응력 등의 존재와 실험변수에 따른 파손시간에 관한 자료는 많이 알려져 있다³. 그러므로 Zircaloy의 응력부식균열에 대한 균열전파속도가 체계적으로 연구되어지면 파괴역학적 모델 수립에 접근할 수 있다.

본 실험에서는 요드에 의한 Zircaloy-4의 응력부식균열 전파속도를 직접 측정하고 K_{ISCC} 를 구하는데 그 목적이 있다.

2. 실험방법

시편은 재결정 (시편ID: OM40) 및 응력이완 (시편ID: OM41) Zircaloy-4 판재로부터 인장시편 형태로 제조하였으며, 균열이 압연방향 쪽으로 진행되도록 방전가공으로 노치를 낸 후 피로균열을 내었다. 실험장치는 그림 1과 같이 일정한 요드분압을 유지할 수 있는 요드 흐름장치와 일정 하중을 가할 수 있는 dead weight system을 사용하였다. 실험온도는 350 °C, 요드분압은 1000 Pa (수조온도: 65 °C)을 유지하였다. 응력집중계수(K_I)는 가해준 일정한 하중과 균열길이로부터 Rooke와 Cartwright의 수식을 이용하여 계산하였으며, 시험은 약 7 MPa√m의 K_I 값에서 시작하여 점진적으로 하중을 높였다. 균열 길이는 DCPD (Direct Current Potential Drop) 방법을 사용하여 측정하였다.

3. 결과 및 고찰

1) 재결정(RX) Zircaloy-4의 균열전파 거동

재결정 Zircaloy-4 판재 (OM40)로부터 4개의 시편 (E214, E215, E216, E217)을 채취하여 동일조건에서 실험하였다. 350 °C, 1000 Pa 요드분위기에서 균열은 그림 2에 요약되었듯이 응력계수에 따라 3단계의 전형적인 응력부식균열 곡선을 보였다. 9.5 MPa√m 이하에서는 균열전파속도가 1×10^{-6} mm/sec 이하의 값으로 거의 균열이 진전되지 않았으나, 9.5 ~ 10.6 MPa√m에서부터 응력에 따라 직선적으로 급격히 빨라지는 전형적인 SCC 1단계 형상을 보였다. 그리고 일정한 균열전파속도를 보이는 SCC 2단계가 16.9 ~ 18.7 MPa√m 이상에서 나타나 $4 \sim 7 \times 10^{-4}$ mm/sec의 평행전파속도에 이르렀으며, SCC 3단계는 34 MPa√m까지 관찰할 수 없었다.

균열이 진행된 시편은 부분적으로 변형이 일어나 균열이 날카롭지 못하고 약간 벌어진 상태였으며 미세조직은 전형적인 재결정 조직을 보였다. SCC 파단면은 그림 4(a)에서 처럼 대부분 river pattern을 보이는 입내파단 모드를 보였으며, 입계와 입계 사이에는 균열면이 기저면을 따라 표면 내부로 연결되어 있음을 뜻하는 미세균열에 의한 crevice 들이 관찰되었다. SCC 균열은 hcp 구조의 기저면을 따라 진행되고, 이 재료는 압연에 의한 집합조직 때문에 기저면이 표면에 대해 약 35도 기울어져 있다. 따라서 SCC에 의한 입내 파단면이 precrack 파단면과 기울어져 있음을 알 수 있으며, 그 경계면에서는 부분적으로 연성파괴 모드를 보이기도 하였다. flutting은 파단면 전체에서 거의 찾아보기 힘들었으나 극히 부분적으로 유사한 양상을 관찰하였다.

임계응력집중계수 (K_{ISCC}) 값 9.5 MPa√m은 Lemaignan 등⁴이 재결정 Zircaloy-4 tube 시편으로 실험한 경우의 5.4 MPa√m 보다 큰 값이고 Knorr 등⁵이 발표한 320 °C Zircaloy-4의 TL 방향 인장시편 ($f=0.33$)의 9.8 MPa√m 값과 거의 일치한다. 값이 차이가 나는 이유는 명확하지 않으나 1축 시험과 2축 시험의 차이가 하나의 원인으로 생각된다. 일반적으로 일축응력의 시험에서 Zircaloy는 2축 응력에 비해 SCC 저항성이 크다. 균열속도 또한 Lemaignan의 이축응력 시험의 경우인 약 0.1 mm/sec 이상의 속도에 비해 매우 낮으나, Knorr 등의 1×10^{-4} mm/sec와 근접하는 값이다. 즉 1축 응력시험은 2축 응력 시험에 비해 임계 응력은 높은 반면 균열 속도는 낮음을 시사한다.

2) 응력이완(SRA) Zircaloy-4의 균열전파 거동

응력이완 Zircaloy-4 (OM41) 판재로부터 3개의 시편 (E240, E246, E268)을 채취하여 350 °C, 1000 Pa 요드농도에서 실험을 수행하였다. 균열전파속도는 그림 3에 요약한 바와 같이 전형적인 SCC 특성곡선을 보였다. 8.1 ~ 8.9 MPa√m의 응력계수에서 균열은 2 ~ 5 x 10⁻⁷ mm/sec 정도의 낮은 속도로 진전이 시작되어 응력계수에 따라 급격히 증가하는 SCC 1단계를 보이며, 17 MPa√m 이상에서 5 ~ 7 x 10⁻⁴ mm/sec 정도의 평행전파속도를 보이는 SCC 2단계가 나타났다.

OM41 시편은 응력이완 열처리 시편으로 입자가 압연된 형태로 길고 입계가 구별이 되지 않아서, 균열은 재결정 시편인 OM40의 경우에 균열이 거의 직선적으로 진전된 것과는 달리 방향을 조금씩 바꾸며 진전하였고 균열의 모드는 판별할 수 없었다. 파단면은 그림 4(b)와 같이 SCC 균열이 기저면을 따라 진전하므로 precrack의 파단면으로부터 기울어진 파단면을 보이며, 그 기울어진 파단면들 사이에는 2차 균열이 정기적으로 존재하였다. 균열 길이에 따른 파단면 양상의 차이는 거의 없었고, 입계 파면 양상의 관찰은 거의 불가능하였다. 단지 재결정 조직과는 달리 길게 늘어져 있는 파단면은 균열이 끊어짐이 없이 연속적으로 진행되었음을 알려주었다

응력이완 Zircaloy-4의 SCC 임계응력계수(K_{ISCC})는 약 8 MPa√m으로서, Lemaignan 등이 SRA Zircaloy-4 tube 시편으로 실험한 경우의 3.4 MPa√m 보다 큰 값이고 Knorr 등이 발표한 320 °C Zircaloy-4의 TL 방향 인장시편 (f=0.33)의 9.8 MPa√m 값과 유사하다. 5 ~ 7 x 10⁻⁴ mm/sec의 평행균열속도는 Lemaignan의 이축응력 시험의 경우인 약 1 x 10⁻³ mm/sec 이상의 속도에 비해 낮았다.

응력이완 Zircaloy-4는 재결정 Zircaloy-4와 비교하면, K_{ISCC} 값은 약간 낮게 나왔으며 균열속도는 유사하거나 약간 높게 나왔다. 이러한 결과는, 비록 K_{ISCC} 값과 균열속도의 차이는 있으나, Lemaignan의 결과와 그 경향은 유사하였다. 응력이완 시편은 재결정 시편에 비하여 인장강도가 높으므로 전통적인 내부가압법에 의한 ISCC 실험에서 SCC 문지방응력이 더 높고 파손변형량은 더 낮은 것으로 알려져 왔다. 본 실험에서의 균열속도 결과를 고려하면, 응력이완 시편은 비록 문지방응력 차원에서 재결정 시편보다 SCC 저항성이 높으나, 응력계수와 균열전파속도 관점에서는 오히려 재결정 시편보다 저항성이 같거나 약간 낮았다.

4. 결론

가. 재결정 Zircaloy-4의 SCC 임계응력계수(K_{ISCC})는 350 °C에서 약 9.5 MPa√m이고, 그 이상에서 SCC 1단계의 양상을 보이며 균열속도가 응력계수에 따라 급속히 빨라졌다. 약 19 MPa√m 이상에서 SCC 2단계 양상을 보이며 4 ~ 7 x 10⁻⁴ mm/sec 의 일정한 속도에 이르렀다.

나. 응력이완 Zircaloy-4의 SCC 임계응력계수(K_{ISCC})는 350 °C에서 약 8 MPa√m이며, SCC 2단계의 평행전파속도는 17 MPa√m 이상에서 5 ~ 7 x 10⁻⁴ mm/sec 정도였다.

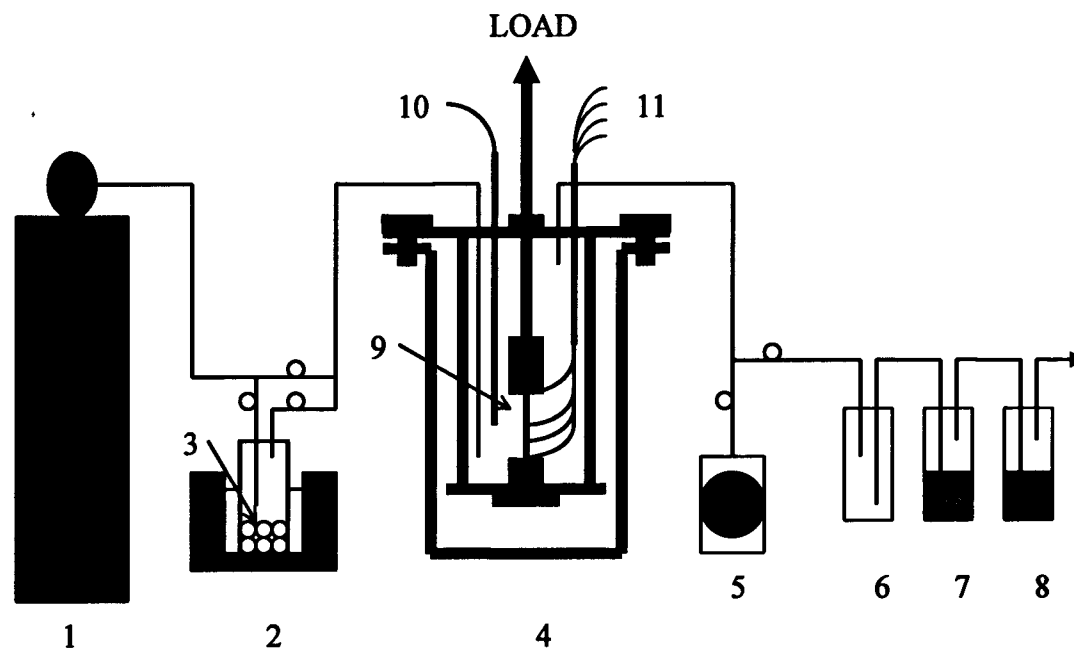
다. 파단 모드는 재결정 혹은 응력이완 조건과 관계없이 극히 부분적으로 입계 파면이 있으나 대부분 입내 파괴였다.

감사의 글

본 연구는 IAEA의 "Stress Corrosion Cracking in Zirconium"의 CRP(Co-ordinated Research Program) 과제 일부로 수행한 것이다.

참고문헌

1. B. Cox and J.C. Wood, in: Corrosion Problems in Energy Conversion and Generation, Ed. C.S. Tedman, Jr. (Electrochemical Soc. New York, 1974) p.275
2. Y.K. Bibilashvily, Y.N. Dolgov, and V.V. Novikov, J. Nucl. Mat., 224 (1995) p.307
3. D. Cubicciotti, B.C. Syrett and R.L. Jones, EPRI Report EPRI-NP-1329 (1979)
4. I. Schuster, C. Lemaignan and J. Joseph, Nucl. Eng. Des. v. 156 (1995) p.343
5. D.B. Knorr, J.M. Piltier and R.M. Pelloux, ASTM STP 824 (1984)



- | | | | |
|------------------|-------------------|---------------------|-----------------|
| 1. Ar gas | 2. Heating mantle | 3. Iodine container | 4. Test chamber |
| 5. Vacuum pump | 6. Molecule sieve | 7 & 8. Ethanol bath | 9. Specimen |
| 10. Thermocouple | 11. Power lines | | |

Figure 1. Schematic diagram of dynamic flowing system.

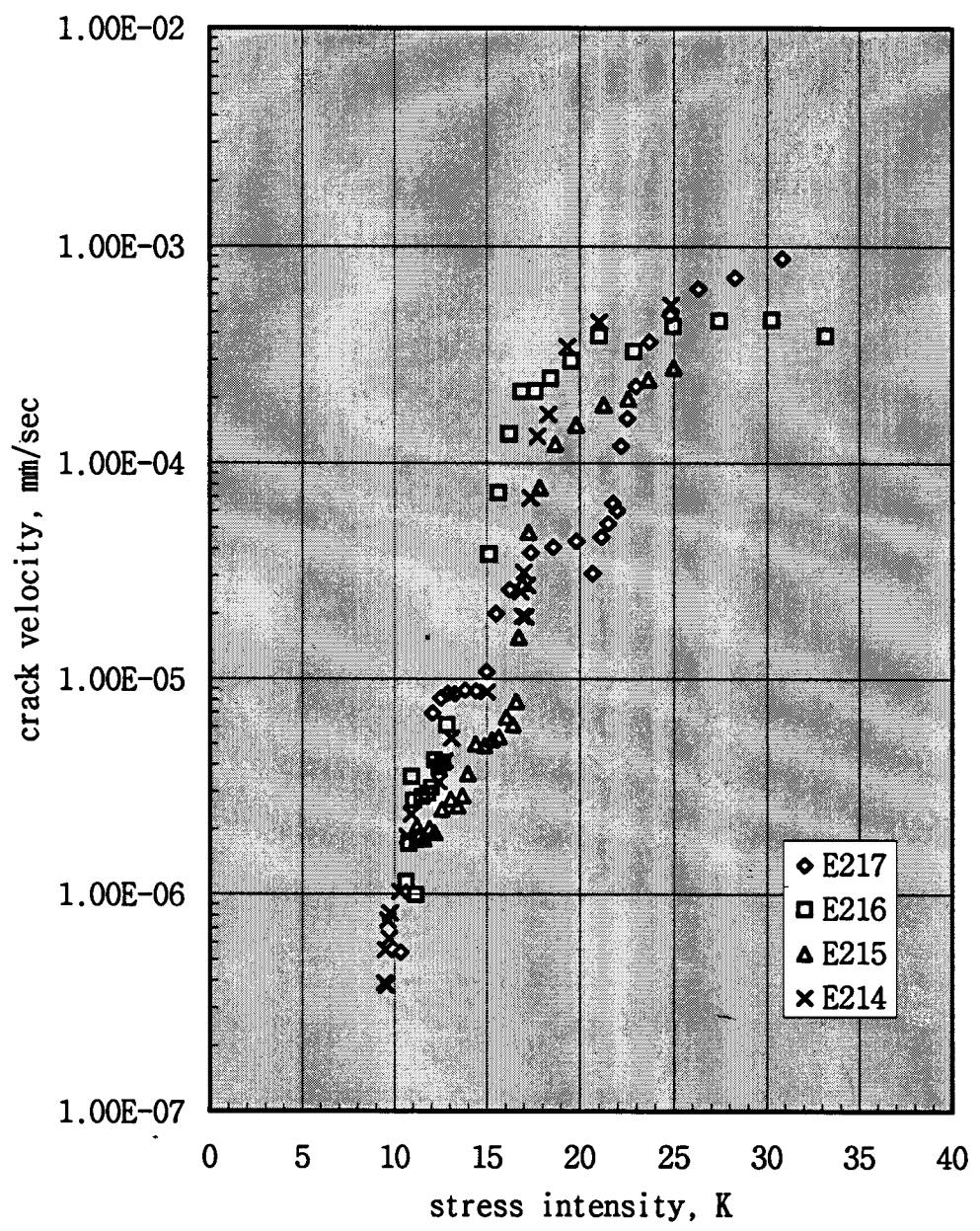
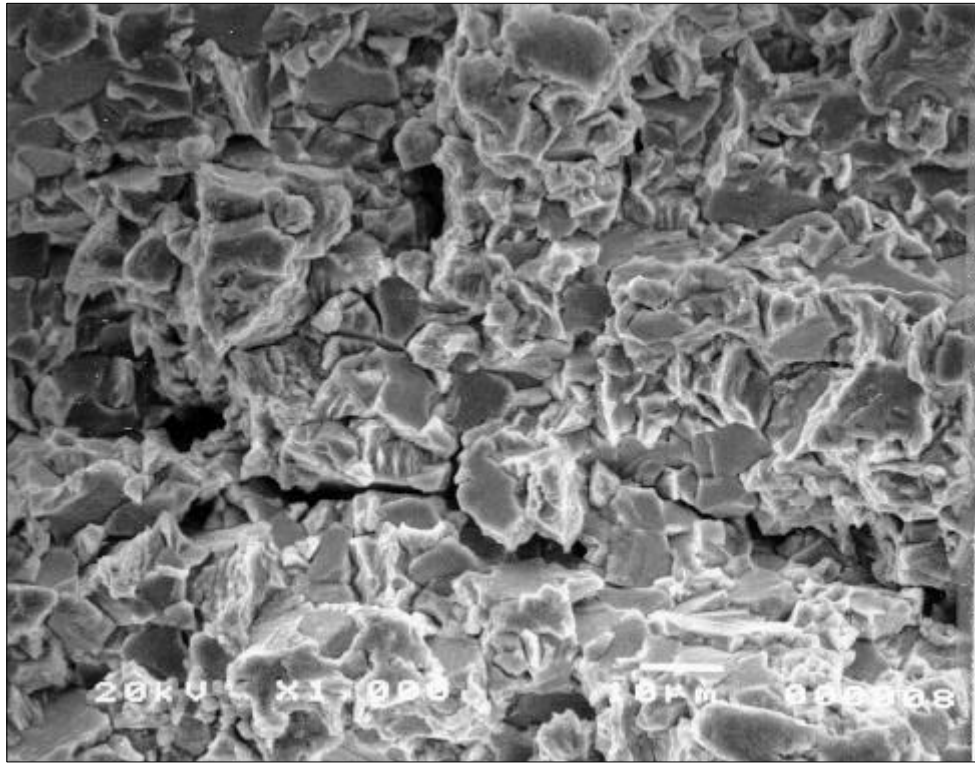
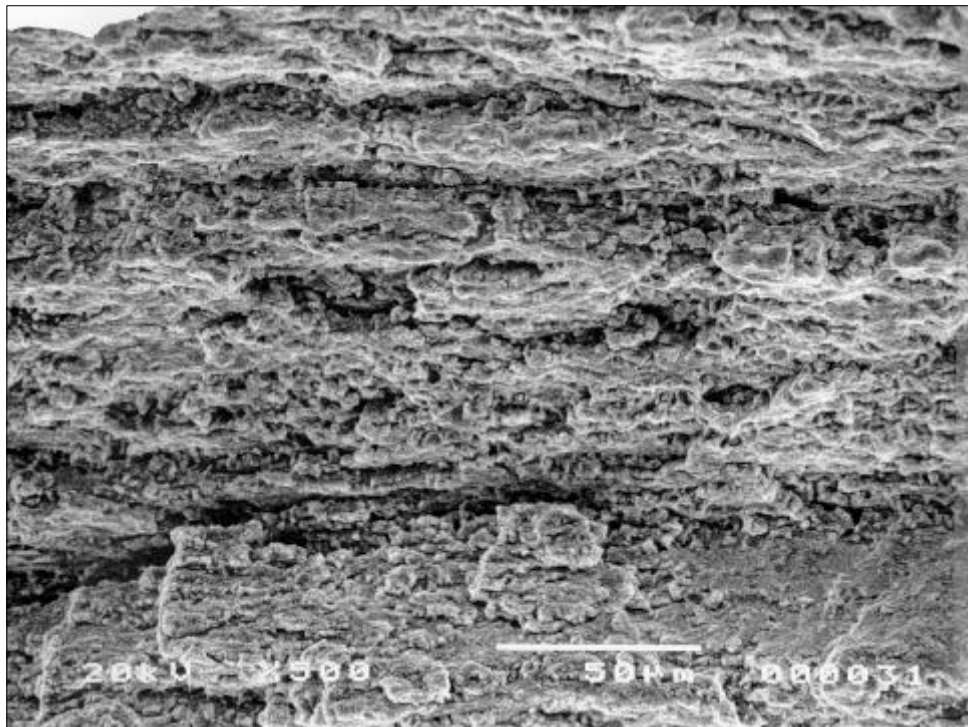


Figure 2. The SCC propagation rate of RX Zircaloy-4 (OM40) as a function of stress intensity factor (350 C)



(a)



(b)

Fig. 4. Fractographs of recrystallized (a) and stress relieved (b) Zircaloy-4